

MENU

SEARCH

INDEX

DETAIL

JAPANESE

1 / 1

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-060502

(43)Date of publication of application : 26.02.2002

(51)Int.Cl.

C08J 5/04
B29B 9/14
// B29K101:12
B29K105:08
B29K201:00
B29K501:00
C08L101:00

(21)Application number : 2000-244919

(71)Applicant : KOBE STEEL LTD
TOYOTA TSUSHO CORP
TAKEHIRO:KK

(22)Date of filing : 11.08.2000

(72)Inventor : KADOWAKI RYOSAKU
HIRANO YASUO
YAMADA TERUHIKO
INOUE TORU

(54) FIBER-REINFORCED THERMOPLASTIC RESIN PELLET AND METHOD FOR PRODUCING THE SAME

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide fiber-reinforced thermoplastic resin pellets, capable of satisfying characteristics such as continuous productivity, having stability in qualities as a molding material, and giving strength characteristics as a molded product, by effectively utilizing a natural plant fiber as a main reinforcing component, and to provide a method for producing the same.

SOLUTION: In the fiber-reinforced thermoplastic resin pellets, 40-65 wt.% of natural vegetable fiber spun yarn and 2-20 wt.% of synthetic organic fiber are exist in a thermoplastic resin in such a state that the spun yarn and the fiber are twisted with each other in opposite directions and made to approximately align in the longitudinal direction of the pellet. The pellets are produced by passing 40-65 pts.wt. of the natural vegetable fiber spun yarn and 2-20 pts.wt. of the synthetic organic fiber through a bath containing the heated and molten thermoplastic resin in such a state that the spun yarn and the fiber are twisted with each other, impregnating/coating the twisted spun yarn and fiber with the resin so as to give a impregnated resin content of 15-58 wt.%, then pulling out and cooling to solidify the resin impregnated spun yarn and fiber, and finally cutting the cooled spun yarn and fiber into pellets having a prescribed length.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2002-60502
(P2002-60502A)

(43)公開日 平成14年2月26日(2002.2.26)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード(参考)
C 0 8 J 5/04	C E R C E Z	C 0 8 J 5/04	C E R 4 F 0 7 2 C E Z 4 F 2 0 1
B 2 9 B 9/14 // B 2 9 K 101:12 105:08		B 2 9 B 9/14 B 2 9 K 101:12 105:08	
審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 9 頁) 最終頁に続く			

(21)出願番号 特願2000-244919(P2000-244919)

(22)出願日 平成12年8月11日(2000.8.11)

(71)出願人 000001199
株式会社神戸製鋼所
兵庫県神戸市中央区脇浜町1丁目3番18号
(71)出願人 000241485
豊田通商株式会社
愛知県名古屋市中村区名駅4丁目7番23号
(71)出願人 000133065
株式会社タケヒロ
愛知県安城市和泉町北大木4番地14
(74)代理人 100067828
弁理士 小谷 悦司 (外1名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 繊維強化熱可塑性樹脂ペレットおよびその製法

(57)【要約】

【課題】 主たる強化繊維として天然の植物繊維を有効に利用し、連続生産性、成形材料としての品質安定性、成形品としての強度特性などを全て満たし得る様な繊維強化熱可塑性樹脂ペレットとその製法を提供すること。

【解決手段】 天然植物繊維紡績糸40～65質量%と合成有機繊維2～20質量%が、互いに逆方向に撚られた状態で熱可塑性樹脂ペレットの長手方向に略整列状態で存在している繊維強化熱可塑性樹脂ペレットを開示する。このペレットは、加熱溶融した熱可塑性樹脂浴に、天然植物繊維性紡績糸40～65質量部と合成有機繊維2～20質量部を撚り合せた状態で通過させ、樹脂含浸量が15～58質量%となる様に含浸・被覆してから引き抜き、冷却固化後所定寸法に切断することによって製造する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 天然植物繊維紡績系40～65質量%と合成有機繊維2～20質量%が、熱可塑性樹脂ペレットの長手方向に略整列状態で存在していることを特徴とする繊維強化熱可塑性樹脂ペレット。

【請求項2】 天然植物繊維紡績系と合成有機繊維とが、共に撚られた状態でペレットの長手方向に略整列状態で存在している請求項1に記載の繊維強化熱可塑性樹脂ペレット。

【請求項3】 天然植物繊維紡績系と合成有機繊維とが、互いに逆方向に撚られた状態でペレットの長手方向に略整列状態で存在している請求項2に記載の繊維強化熱可塑性樹脂ペレット。

【請求項4】 加熱溶融した熱可塑性樹脂浴に、天然植物繊維性紡績系40～65質量部と合成有機繊維2～20質量部を撚り合せた状態で通過させ、樹脂含浸量が15～58質量%となる様に含浸・被覆してから引き抜き、冷却固化後所定寸法に切断することを特徴とする繊維強化熱可塑性樹脂ペレットの製法。

【請求項5】 合成有機繊維を、天然植物繊維紡績系の撚り方向と反対方向に撚り合わせながら熱可塑性樹脂浴に通過させる請求項4に記載の製法。

【請求項6】 合成有機繊維として、長尺繊維のマルチフィラメントを使用する請求項4または5に記載の製法。

【発明の詳細な説明】**【0001】**

【発明の属する技術分野】 本発明は、繊維強化樹脂成形材料として用いられる繊維強化熱可塑性樹脂ペレットとその製造方法に関し、より詳細には、強化繊維として天然植物繊維紡績系と合成有機繊維を含み、射出成形、射出圧縮成形、押出成形、ブロー成形などの成形原料として使用することにより、剛性および耐衝撃性に優れた成形品を与える繊維強化熱可塑性樹脂ペレットとその製法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 最近、木材パルプや麻類、椰子、竹などの天然植物繊維を強化繊維として用いた繊維強化樹脂についての研究が盛んに進められている。ちなみに、廃棄物公害についての認識が高まっている昨今、天然繊維強化樹脂は、強化繊維としてガラス繊維を用いた強化樹脂製品を廃棄する際に見られる離脱ガラス繊維の飛散などによる人体等への影響に対する懸念がなく、また、焼却処理する場合でも全てを熱エネルギーとして回収することができ、更には、ガラス繊維やタルク等の無機フィラーに由来する残灰の発生や有害ガスの発生も起こさないからである。

【0003】 ところがこれらの天然植物繊維は、従来から繊維強化樹脂用の強化繊維として汎用されてきたガラス繊維や炭素繊維、金属繊維、各種合成繊維などの連続

繊維に対して、繊維が非連続であることから、これを樹脂と複合し、長繊維の特徴を活かした成形用の樹脂ペレットを製造する際には特別の技術が必要となる。例えば、長繊維の連続ストランドであれば、これを熔融樹脂浴に連続的に含浸させて引き取り、冷却して樹脂を固化させてから任意の長さに切断する汎用の製法によって繊維強化樹脂ペレットを連続的に生産性よく製造できるが、非連続の天然繊維では、これを撚り合わせて紡績糸状にするにしても、樹脂含浸時に十分な張力を確保することができず、熔融樹脂浴中に含浸走行させたときに非連続繊維が樹脂浴中で解れて切断することがあり、安定した連続操業を確保することが困難であるからである。

【0004】 そこで、非連続の天然植物繊維を強化繊維として用いて繊維強化樹脂ペレットを製造する方法として、例えば下記のような方法が提案されているが、それぞれ一長一短がある。

【0005】 (1) ロール混練装置を用いて溶融状態の熱可塑性樹脂に天然植物繊維を均一に混練し、冷却固化させてから破碎して樹脂ペレットを製造する方法（例えば特開昭57-108161号公報など）。この方法であれば、非連続繊維がマトリックス樹脂中に均一に分散された成形材料を得ることができるが、樹脂ペレットのサイズが不揃いであるため、成形工程を含めた成形材料としての取扱い性や成形品の品質安定性に問題がある。

【0006】 (2) 非連続繊維を紡績糸としてから織編物状、不織布状、マット状等に加工しておき、これを熔融樹脂浴に含浸してから冷却固化し、適当な寸法形状に切断して樹脂ペレットを製造する方法（特開昭58-28307号、特開平3-7307号、同3-30916号、同9-41280号など）。この方法は、樹脂含浸物をシート状などの2次成形材料として使用する用途には適しているが、ペレット状の成形材料とするには、これを冷却固化してから更に適当な寸法・形状に切断しなければならぬので工程数が多く生産性が低い。しかも切断によるロスが多かったり、切断時に生じるダスト（切屑）により作業環境が汚染されるといった問題も生じてくる。

【0007】 (3) 混練装置や混練押出機などにより熔融樹脂と非連続繊維を混練し、棒状に溶融押出してから冷却固化し任意の長さに切断する方法（特開昭62-146945号、同62-146947号など）。これらの公報には、強化繊維として天然繊維35%と合成有機繊維65%を併用した例が示されている。また特開平3-290453号公報には、ポリプロピレン系樹脂に、剛性の向上を目的として天然繊維を、また耐衝撃性の向上を目的としてポリエステル繊維を配合した複合繊維強化樹脂組成物が開示され、この公報には、ポリエステル以外の繊維として麻や綿の如き天然繊維が使用できることも明らかにされている。しかしこれらの方法では、綿状の繊維を混練押出機に投入する際の供給が困難であった

り、また、樹脂を加熱して熔融混練する際に強化繊維が熱劣化を起こしたり混練力により機械的な破損を受け、強化効果が損なわれる。特に木材パルプや麻などの植物繊維は、通常180℃程度の温度で熱分解を開始するので、繊維の種類は混練時間に応じてこうした問題を引き起こし難い熱可塑性樹脂を選択して複合しなければならず、マトリックス樹脂の選択の幅が狭い。しかも、その様な低融点の樹脂は概して強度不足であるため、繊維強化樹脂成形品の用途も自ずと制限される。

【0008】また、上記特開平3-290453号公報の特許請求の範囲には、ポリエステル繊維と共にそれ以外の繊維、例えば天然繊維を1~25質量%程度併用することが記載されているが、この程度の配合量では満足のいく高剛性の成形品を得ることは困難であり、そのため、無機フィラーを併用して剛性改善を図っていることが読み取れる。

【0009】(4)強化用の天然繊維紡績糸と熱可塑性樹脂繊維との複合繊維束を作製し、これを加熱して熱可塑性樹脂繊維を熔融させてから固化し適当な長さのペレットに切断する方法(特開平4-163002号など)。この方法を実施するには、予め熱可塑性樹脂繊維を製造し、あるいは強化繊維との混合糸を製造しなければならず、工程数が多いため経済的に有利な方法とは言えず、しかも熱可塑性樹脂繊維の加熱熔融条件によっては含浸不足となって空隙欠陥を生じることがある。

【0010】(5)この他、例えば特公昭63-37694号、特開平1-178411号、同4-119807号、特公平6-57407号などには、強化用繊維の繊維束に熔融させた熱可塑性樹脂を含浸し、これを冷却固化させてから適当な長さに切断して樹脂ペレットを製造する方法が開示されており、これらの中には、強化繊維としてジュート(麻繊維)などを使用し得る旨の記述も見られる。しかし、そこに開示されている強化繊維の大半は連続長繊維であり、非連続繊維を強化繊維として熱可塑性樹脂と複合する際の具体的な問題点については何らの課題も提起されていない。

【0011】(6)天然繊維強化樹脂ペレットと合成有機繊維強化樹脂ペレットを公知の技術によって別々に製造し、それらをブレンドし成形材料として使用することも可能であるが、合成有機繊維と天然繊維を均一に分散させてそれらの複合強化効果を有効に発揮させる上では、それらの強化繊維が同一ペレット内に含有されていることが好ましい。

【0012】

【発明が解決しようとする課題】本発明者らは上記の様な従来技術の下で、強化用繊維として最近その使用が注目されている天然の植物繊維に注目し、これを強化用繊維として熱可塑性樹脂と複合して成形用の繊維強化樹脂ペレットを製造する際に、前述した様な樹脂ペレットに指摘される問題、特に連続生産性、成形材料としての品

質安定性、成形品としての強度特性などを全て満たし得る様な繊維強化熱可塑性樹脂ペレットの開発を期して研究を進めてきた。従って本発明の課題は、主たる強化繊維として天然の植物繊維を有効に利用し、連続生産性、成形材料としての品質安定性、成形品としての強度特性などを全て満たし得る様な繊維強化熱可塑性樹脂ペレットとその製法を提供することにある。

【0013】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決することのできた本発明にかかる繊維強化熱可塑性樹脂ペレットとは、天然植物繊維紡績糸40~65質量%と合成有機繊維2~20質量%が、熱可塑性樹脂ペレットの長手方向に略整列状態で存在しているところに要旨を有している。強化繊維として用いられる上記天然植物繊維紡績糸と合成有機繊維は、該樹脂ペレット内において、共に撚られた状態で当該ペレットの長手方向に略整列状態で存在しているものが好ましく、中でも、天然植物繊維紡績糸と合成有機繊維とが互いに逆方向に撚られた状態でペレットの長手方向に略整列状態で存在しているものは、ペレット自体の生産性や成形材料として優れた強度特性を与えるものとして特に好ましい。

【0014】また本発明にかかる製法とは、加熱熔融した熱可塑性樹脂浴に、天然植物繊維性紡績糸40~65質量部と合成有機繊維2~20質量部を撚り合せた状態で通過させ、熱可塑性樹脂の含浸量が15~58質量%となる様に含浸・被覆してから引き抜き、冷却固化後所定寸法に切断するところに要旨を有している。

【0015】この方法を実施する際には、合成有機繊維として長尺繊維のマルチフィラメントを使用し、これを、天然植物繊維紡績糸の撚り方向と反対方向に撚り合わせながら熱可塑性樹脂浴に通過させることにより、該ペレットの連続生産性を一層高めることができるので好ましい。

【0016】

【発明の実施の形態】上記の様に本発明の繊維強化熱可塑性樹脂ペレットは、天然植物繊維紡績糸40~65質量%と合成有機繊維2~20質量%が、熱可塑性樹脂ペレットの長手方向に略整列状態で存在しているところに最大の特徴を有しており、この様に天然植物繊維紡績糸と合成有機繊維を適正比率で複合使用することによって、優れた強度特性を有する成形品を与える繊維強化樹脂ペレットを優れた生産性の下で効率よく製造可能にしたもので、以下、本発明にかかる繊維強化樹脂ペレットとその製法を詳細に説明していく。

【0017】本発明においては、天然植物繊維紡績糸と合成有機繊維を所定の配合比率となる様に使用し、これらを引き揃えて、加熱熔融した熱可塑性樹脂浴に浸漬・通過させると共に、該熔融樹脂浴中でそれら繊維に撚りをかけながら集束させ、これら強化繊維束に熱可塑性樹脂を含浸させる。そして、熱可塑性樹脂の含浸された強

化用繊維束をノズルを通して引き出し、得られる強化繊維ストランドを冷却してから一定の長さに切断することにより、ペレットの長手方向に前記天然植物繊維紡績糸と合成有機繊維が撚り合わされた状態で埋没された繊維強化樹脂ペレットを得る。

【0018】そして、この方法によって得られる本発明の繊維強化熱可塑性樹脂ペレットは、上記製法上の特徴から、天然植物繊維紡績糸が合成有機繊維と共に撚りが掛けられた状態で、ペレット長手方向に略整列状態で熱可塑性樹脂中に存在（埋没）している点で特徴的構造を有している。

【0019】ところで本発明では、強化繊維として用いられる天然植物繊維紡績糸のペレット中に占める含有比率を40～65質量%の範囲に設定すると共に、合成有機繊維の含有比率を2～20質量%の範囲に設定することが重要な要件となっている。これは、天然植物繊維紡績糸の強化作用、特に成形材料としての合成強化作用を有効に発揮させると共に、該天然植物繊維紡績糸と共に適量の合成有機繊維を使用することにより、該紡績糸に張力を掛けた状態で熔融樹脂浴を通過させる際の該紡績糸の切断を防止し、安定した連続生産を実現する上で重要な要件となる。

【0020】即ち、強化繊維として天然植物繊維紡績糸を単独で使用し、これを加熱熔融した熱可塑性樹脂浴に通して樹脂の含浸を行なおうとすると、該紡績糸が含浸浴中で張力を受けたときに、短繊維が絡まり合った状態の該紡績糸は、熔融樹脂浴中で解れて切断し易く、連続的な含浸引き抜きを円滑に遂行できなくなる。ところが、該紡績糸と共に合成有機繊維、特に長繊維マルチフィラメント状の合成有機繊維を含浸浴中に通すと、天然植物繊維紡績糸に掛かる含浸引き抜きのための張力は該合成有機繊維によって支持され、その結果として、該紡績糸が含浸浴中で切断するといったことが防止される。

【0021】この時、該紡績糸と合成有機繊維を互いにより合わせながら含浸浴中に通せば、合成有機繊維が該紡績糸の外周側に巻付いてその解れを防止する作用も発揮し、引き抜き繊維全体としての張力に対する抵抗力が高められると共に、該紡績糸の一部が毛羽立ち状となって樹脂浴内へ脱落して堆積する現象（樹脂浴中の脱落繊維の堆積量が増大すると、樹脂浴の粘性が高まると共に該堆積繊維が含浸用繊維繊維の円滑走行を阻害する現象）も抑えられ、連続操業を一層円滑に行なうことができる。

【0022】ところで、従来技術の前記(2)として示した様に、植物繊維マットと樹脂を複合した繊維強化樹脂としては、植物繊維含量が50質量%程度のものが知られている。またバッチ式ミキサーを使用した方法では、天然植物繊維含量が60質量%程度のものも試作されている。しかしながら、押出機などを用いた連続ストランド方式で繊維強化樹脂ペレットを製造する方法に関する

限り、35質量%を超える量の植物繊維を強化繊維として含む繊維強化樹脂材は提案されていない。ところが本発明では、前述の如く植物繊維を紡績糸として使用し、且つこれを適量の合成有機繊維と併用することによって40質量%以上の多量の植物性繊維を強化繊維として支障なく含有せしめ得る様にしたが、それに伴って、以下に示す如く、これまで認識されたことのない特有の作用効果も享受できることが確認された。

【0023】即ち、天然植物繊維には周知の通り10質量%前後のリグニン質が含まれており、これはともすれば熱劣化や変色などの原因になることから不要成分乃至有害成分として嫌われていた。ところが、前述の如く多量の植物繊維を利用する本発明においては、該リグニン質がマトリックスとなる熱可塑性樹脂と植物繊維あるいは併用される有機合成繊維との間でバインダー的作用を発揮し、複合樹脂成形材料としての一体性を高め、成形品の強度特性や均質性を高める上で有効に作用することが確認された。

【0024】ところで、通常の紡績糸にはZ撚りとS撚りがあり、中でもZ撚りが一般的であるが、本発明で樹脂を含浸被覆させた強化繊維に撚りをかけて引き抜く際の撚り方向について、例えばZ撚りの天然紡績糸に対し全体にS撚りを加えると、含浸工程で植物繊維紡績糸が少し撚り戻されることになるため、熔融樹脂の含浸をより効果的に行うことができる。この際、合成有機繊維も一緒にS撚りを付与されながら引き取られることになるので、撚りの戻った天然紡績糸に合成有機繊維が巻付いた状態となり、植物繊維紡績糸が撚り戻りにより解れて切断されることはない。

【0025】ちなみに天然紡績糸のみであれば、撚り戻りにより熔融樹脂浴中で切断する恐れが生じるので、含浸・引き抜きの条件設定が非常に難しくなる。また、全体に撚りをかけることにより、たとえ製造時に植物繊維紡績糸の一部が解れて毛羽立ったとしても、再度一緒に巻き込みながら強化繊維ストランドを引き取ることができるので、毛羽が熔融樹脂浴に溜まってストランドの走行を阻害し、走行抵抗の増大により繊維束が完全に切断して製造がストップするといったトラブルを起こすこともなく、安定した高速生産が可能となる。

【0026】更に、強化繊維に撚りが付与されることにより、ペレット長に比べてペレット内に含まれる強化繊維の長さは若干長くなり、より長い強化繊維を含むペレットをハンドリング上有利（ペレット長が長いと成形時にホッパーでブリッジを起こし易くなる）に取り扱うことができる。

【0027】本発明で使用する天然の植物繊維紡績糸としては、亜麻、苧麻、マニラ麻、サイザル麻、黄麻（ジュート）、大麻、ケナフ、カラムシ、ココナツ繊維、綿、パンヤ綿、しゅろなどの紡績糸が例示され、これらは単独で使用し得る他、必要により複数種を組み合わせ

て用いることもできる。複数種を併用する場合には、複数種を組み合わせて紡績してもよいし、或いは、単独種の紡績糸を熱可塑性樹脂と複合（含浸）する際に、複数種引き揃えて組み合わせることもできる。天然植物繊維の選択は、最終的に得られる成形品に期待される物性に応じて適切なものを選べばよい。

【0028】紡績糸の太さも特に制限されないが、JIS L 0101に規定されたジュート番手（恒長式）で表わすと5～80番手（29, 029mで1kgの重さの紡績糸を1番手という）のものを使用することが好ましい。紡績糸の太さが5番手より小さいと紡績糸全体としての強度が不足気味となって含浸・引取り時に切断を起こし易くなり、安定した連続操業が害されることがある。一方、80番手を超えて過度に太い紡績糸を使用すると、樹脂が含浸不足となって成形時の繊維の分散が悪くなり、成形品の機械的物性値が不均一且つ不十分となる傾向が生じてくる。更には、熔融樹脂の含浸・引取り後冷却してペレット状に切断する際に毛羽が発生し易くなり、作業環境を汚染する恐れが生じるばかりでなく、ペレットを射出成形機等のホッパーに投入する際に、生じた毛羽が原因となってホッパー部でブリッジを起し易くなり、連続生産の障害になることがある。こうした点も考慮して、紡績糸のより好ましい番手の下限は7番手以上、更に好ましくは10番手以上、より好ましい番手の上限は70番手以下、更に好ましくは50番手以下である。

【0029】強化繊維として使用される天然植物繊維紡績糸の含有量は、ペレット全量中に占める比率で40質量%以上、より好ましくは45質量%以上で、65質量%以下、より好ましくは60質量%以下が好ましい。天然植物繊維紡績糸の含有量が40質量%未満では、強化繊維としての絶対量不足により成形品の弾性率が不足気味となり、逆に65質量%を超えて過度に多くなると、成形材料として加熱熔融時の流動性が悪くなり、成形品形状に制約が生じたり成形品外観が悪くなるといった問題を生じる原因になる。

【0030】本発明において他の強化繊維として用いる合成有機繊維は、使用する熱可塑性樹脂の熔融軟化温度と合成有機繊維の耐熱性との関係において最適のものを選択すればよく、成形温度域でダメージを受けない耐熱性を有するものであれば特に制限されないが、好ましいものとしては、例えば、ポリプロピレン系繊維、ポリアミド系繊維、ポリエステル系繊維、ポリイミド系繊維、ポリアリレート系繊維、ポリカーボネート系繊維、シンジオタクチックポリスチレン系繊維、ポリアルキレンパラオキシベンゾエート系繊維などが例示される。これらの合成繊維も、単独で使用し得るほか必要により複数種を組み合わせて用いることができる。これら合成有機繊維は、前述した如く熔融樹脂浴での含浸走行時における張力に耐える強度を確保するうえで、連続繊維のマルチフ

ィラメントロービングを使用することが望ましい。

【0031】上記合成有機繊維の中でも、物性やコストの面から特に好ましいのはポリエチレンテレフタレート繊維、ポリブチレンテレフタレート繊維などのポリエステル系繊維、ポリアミド6やポリアミド6・6などのポリアミド系繊維であり、中でもポリエチレンテレフタレート繊維が最適である。ポリエチレンテレフタレート繊維の場合、強度として4.44dtex（4g/デニール）以上、好ましくは6.7dtex（6g/デニール）以上の繊維を用いることが耐衝撃性を改善する上で特に好ましい。

【0032】合成有機繊維の径は、ペレット製造時の取り扱い性や該ペレットを用いて得られる成形品の強度特性等を考慮して、0.5μm以上、より好ましくは1μm以上で、100μm以下、より好ましくは50μm以下であるのが好ましい。

【0033】上記合成有機繊維の含有量は、2質量%以上、より好ましくは3質量%以上で、20質量%以下、より好ましくは15質量%以下が好ましく、2質量%未満では、強化繊維としての配合量不足により満足のいく耐衝撃性改善効果が得られ難くなる他、含浸走行時に張力不足となって繊維切れを起こす恐れが生じ、逆に20質量%を超えると、該繊維の分散が悪くなって成形品の物性値がバラツキを生じる原因になったり、成形材料としての熱時流動性が低下して成形性が悪くなり、成形品形状に制約を受けたり成形品外観が悪くなる。

【0034】なお、上記天然植物繊維紡績糸と合成有機繊維を熱可塑性樹脂浴に通過させて含浸させる際には、両者を天然植物繊維性紡績糸40～65質量部に対して合成有機繊維2～20質量部の比率で使用し、これらを撚り合せた状態で樹脂浴に通過させ、その下流側でノズル等から引き抜く際に、熔融樹脂の絞り量を調整することにより、得られる含浸ストランドの樹脂含有量が15～58質量%となる様にコントロールしながら引き抜きを行なう。

【0035】本発明においてマトリックス成分となる熱可塑性樹脂としては、好ましくは熔融軟化温度が220℃程度以下、より好ましくは200℃程度以下、さらに好ましくは180℃程度以下のものを選択することが望ましい。その理由は、該熱可塑性樹脂の熔融軟化温度が高すぎると、本発明によって得られたペレットを成形して製品とする際に繊維が高温に曝されて熱分解や熱劣化を起こし、強化繊維としての機能が損なわれることがあるからである。この様な観点から、好ましい熱可塑性樹脂としては、ポリプロピレン系樹脂、ポリエチレン系樹脂、α-オレフィン系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリスチレン系樹脂、AS樹脂、あるいは、ポリ乳酸系の生分解性樹脂などの如き単独重合樹脂や共重合樹脂、更には、それらの2種以上を併用したブレンド樹脂などが好ましいものとして例示される。それ

ら熱可塑性樹脂の選別に当たっては、最終製品として得られる繊維強化樹脂成形品の要求特性などを考慮して任意に選択される。

【0036】上記熱可塑性樹脂の中でも、成形品の物性やコストなどのバランスを考慮して特に好ましいのは、ポリプロピレン、高密度ポリエチレン、直鎖低密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、ブテン-1、ヘキセン-1、オクテン-1などの α -オレフィン、あるいはそれらの共重合体などのポリオレフィン系樹脂、不飽和カルボン酸やその誘導体で変性された変性ポリオレフィン樹脂、あるいはそれらの2種類以上のブレンド樹脂である。

【0037】上記変性に用いられる不飽和カルボン酸あるいはその誘導体としては、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、イタコン酸、フマル酸、あるいはそれら酸のエステル、無水マレイン酸、無水イタコン酸などが挙げられる。特に好ましいのは、無水マレイン酸とメタクリル酸グリシジルエステルである。

【0038】更に本発明においては、前記天然植物繊維紡績系に含まれている前記リグニン成分などの熱分解によって生じる臭いを抑えるため、結晶性の熱可塑性樹脂を使用することが望ましく、結晶化度は高い方が好ましい。これは結晶化部分に臭気成分が取り込まれ、臭いを抑制する作用が期待されるからである。こうした観点から、前記樹脂の中でも、高結晶性プラスチックであるポリプロピレンや高密度ポリエチレンは好ましいものとして推奨される。

【0039】また本発明においては、先に述べた様に天然植物繊維中に含まれるリグニン質により強化繊維と熱可塑性樹脂の親和性が高められ、均一で一体性の高いペレットを得ることができるが、強化繊維と熱可塑性樹脂の密着性を更に改善するため、繊維および樹脂の両者に対して親和性の良好な各種の変性樹脂を添加することも有効である。例えばポリオレフィン系樹脂に対しては、無水マレイン酸変性ポリオレフィン、オキサソリン変性ポリオレフィン、メタクリル酸グリシジルエステル変性ポリオレフィン等を添加すると、複合材料としての一体性が高められ、成形品の物性向上が期待できる。その際に添加される変性ポリオレフィン樹脂の量は、ポリオレフィン系樹脂に対して0.1～15質量%、より好ましくは0.2～12質量%、更に好ましくは0.5～10質量%である。

【0040】またマトリックスとなる熱可塑性樹脂には、成形品に求められる物性や用途に応じて各種の添加剤を加えることができる。それらの添加剤としては、分散剤、滑剤、難燃剤、酸化防止剤、帯電防止剤、光安定剤、紫外線吸収剤、カーボンブラック、結晶化促進剤（増粘剤）、可塑剤、顔料、染料などが挙げられ、これらも必要に応じて2種類以上併用することができる。

【0041】本発明に係る繊維強化熱可塑性樹脂ペレッ

トのペレット長は2～24mmの範囲が好ましく、2mm未満の短尺物では、強化繊維が短尺となるため十分な強度特性が得られ難くなり、逆に24mmを越えて過度に長尺になると、成形時に該ペレットがホッパーでブリッジを引き起こし、安定供給が阻害されてスムーズな成形ができなくなる。こうした観点から、ペレットのより好ましい長さは3mm以上、更に好ましくは4mm以上で、15mm以下、さらに好ましくは12mm以下である。

【0042】ペレット径は、ペレット自体の生産性や該ペレットを用いた成形時のハンドリング性を考慮すると1mm以上、5mm以下、より好ましくは、2mm以上、4mm以下である。

【0043】ペレットの好ましい寸法を、上記ペレット長(L)とペレット径(D)の関係で表現すると、 L/D （アスペクト比）が1以上、6以下であることが好ましい。該ペレットの L/D が1未満では、含浸・引き抜き後のペレット切断時にペレットが割れを生じ易く、強化用繊維の毛羽立ちが顕著となってハンドリング性が悪くなる。また、該ペレットの L/D が6を越えて過度に細長いペレットになると、成形に際しスクリュウ等へのペレットの噛込み時に破損し易く、強化用繊維長が短くなって十分な強度特性の成形品が得られ難くなる。こうした観点から、ペレットのより好ましい L/D は2以上、5以下である。

【0044】天然植物繊維は、その種類にもよるが、一般的に180℃を超える付近から熱劣化を起し易くなる傾向があるので、融点や軟化点の高い熱可塑性樹脂を用いる場合には、合成有機繊維の耐熱性を含めて強化繊維の劣化を配慮することが望まれる。強化繊維に樹脂を含浸させる際の溶融樹脂温度は低い方が好ましいが、強化繊維への樹脂の含浸度合いやストランド（樹脂が含浸された強化繊維束）の引取り速度に影響のある樹脂粘度とのバランスを考慮して最適の温度を選択することになる。

【0045】ちなみに、熱可塑性樹脂の選択に当たっては、強化繊維に含浸させるのに適切な溶融粘度となるものを選択し、可能な範囲で溶融粘度が十分低くなる温度に熱可塑性樹脂を加熱して溶融する。例えば、ポリプロピレン樹脂の場合には、目安としてメルトフローレート（MFR：230℃、2.16kgf）で5g/10分以上、より好ましくは15g/10分以上、更に好ましくは30g/10分以上で、200g/10分以下、より好ましくは150g/10分以下、更に好ましくは100g/10分以上のものを選択するのが良い。

【0046】ポリプロピレン系樹脂のMFRが上記範囲未満では、多量の植物繊維紡績系を含むペレットの生産性が低くなる傾向が現われ、製造できたとしても強化繊維への樹脂の含浸が不十分となり、得られるペレットから強化繊維の脱落が起こり易くなってハンドリング性に

問題を生じたり、成形品としての強化繊維の分散性不良により強度特性値のパラツキが大きくなる傾向が生じてくる。一方、MFRが上記好適範囲を超えると、成形品の強度や弾性率、耐熱性といった特性が低下するため好ましくない。

【0047】また、強化繊維として例えばジューツ紡績糸とポリエチレンテレフタレート繊維を選択した場合には、ポリプロピレン樹脂の熔融樹脂温度として、200℃以上、280℃以下、より好ましくは220℃以上、260℃以下、更に好ましくは230℃以上、255℃以下が好ましい。

【0048】この際、強化繊維の熱劣化を抑えるという観点から、強化繊維が熔融樹脂浴中に入りノズルを通して取り出されるまでの時間が10秒以内、好ましくは5秒以内となる様にコントロールすることが好ましい。この時間が長くなり過ぎると強化繊維が熱劣化を起こす可能性が高くなる。一方、この時間が短か過ぎると、熱可塑性樹脂の含浸が不十分となるので、好ましくは浸漬時間を0.1秒以上、より好ましくは0.15秒以上確保することが望ましい。

【0049】

【実施例】以下、実験例を挙げて本発明をより詳細に説明するが、本発明はもとより下記実施例によって制限を受けるものではなく、前・後記の趣旨に適合し得る範囲で適当に変更を加えて実施することも可能であり、それらはいずれも本発明の技術的範囲に含まれる。

【0050】実験例

熱可塑性樹脂として、密度が0.91g/cm³、MFR(230℃、2.16kgf)が65g/10分、融点165℃のホモポリプロピレン樹脂(PP)95質量%に、無水マレイン酸変性ポリプロピレン樹脂(三菱化学製)5質量%をブレンドしたペレット(PP系樹脂)を使用した。

【0051】植物繊維紡績糸としてケナフ紡績糸(1.72g/m、Z撚り、50番手、リグニン含量：約8.2質量%)とサイザル紡績糸(2.4g/m、Z撚り、70番手、リグニン含量：約3.4質量%)を、また合成有機繊維として、タイヤコード用の繊維径5.6dt

ex、強度7.96cN/dtexで300本のポリエチレンテレフタレート(PET)繊維ロービングを用いた。

【0052】上記熱可塑性樹脂ペレットを240℃で熔融した樹脂浴に、表1に示す配合で、上記植物繊維紡績糸とPET繊維ロービングを引き揃えて繊維束全体にS撚りをかけながら通して含浸させ、15m/分のライン速度で引き抜いた(繊維束の樹脂浴通過時間は約0.8秒)。引き続いてストランド(樹脂が含浸・被覆した強化樹脂繊維束)を冷却・固化させてから長さ6mmに切断し、繊維強化熱可塑性樹脂ペレットを製造した。

【0053】上記方法を実施する際に、含浸・被覆時におけるストランド切断の有無を観察すると共に、切断して得たペレットの断面状態を観察し、表2に示す結果を得た。また、得られた各ペレットを乾燥機で6時間乾燥し、下記の成形に用いた。

【0054】得られた成形材料(ペレット)を、射出成形機(住友-ネスタール社製「SG220U-SYCAP・MIIIA」、スクリー径45mmφ、スクリーノのL/Dは21.8、スクリーの圧縮比は2.3)を用いて、シリンダー温度180℃、金型温度60℃で物性測定用試験片(JIS規格)を成形し、各試験片について下記の方法で評価試験を行ない、結果を表3に示した。

【0055】評価方法：

1) 曲げ強度および曲げ弾性率(JIS K7203に準拠) 測定温度23℃、

2) ノッチ付アイゾット衝撃強度(JIS K7110に準拠) 測定温度23℃、

また、参考例として上記と同じポリプロピレン系樹脂をマトリックス樹脂として使用し、これにポリプロピレン樹脂用に表面処理されたガラス繊維を20質量%配合し、混練押出機を用いてガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂ペレットを製造した。これを成形原料として、上記と同様に物性測定用試験片の作製および評価試験を行ない、結果を表3に併記した。

【0056】

【表1】

	ケナフ量 (質量%)	ケナフ 本数	サイザル量 (質量%)	サイザル 本数	PET繊維量 (質量%)	PET繊維 本数	PP系樹脂量 (質量%)	ペレット径 (mm)
実施例1	50	1	—	—	10	2	40	2.0
実施例2	—	—	50	1	3	1	47	2.4
実施例3	—	—	60	1	4	1	36	2.1
実施例4	40	1	—	—	16	4	44	2.2
実施例5	—	—	45	1	12.5	4	42.5	2.5
実施例6	18	1	25	1	10	6	47	3.4
比較例1	50	1	—	—	—	—	50	2.0
比較例2	—	—	30	1	—	—	70	3.2
比較例3	—	—	—	—	50	12	50	2.1
比較例4	30	1	—	—	6	2	64	2.7
比較例5	—	—	45	2	1.5	1	53.5	3.6

【0057】

【表2】

	含浸引き抜き安定性
実施例1	ストランドの切断なし
実施例2	ストランドの切断なし
実施例3	ストランドの切断なし
実施例4	ストランドの切断なし
実施例5	ストランドの切断なし
実施例6	ストランドの切断なし
比較例1	頻繁にストランドの切断あり
比較例2	頻繁にストランドの切断あり
比較例3	ストランドの切断なし
比較例4	ストランドの切断なし
比較例5	ストランドの切断なし
参考例	ストランドの切断なし

【0058】

【表3】

	実 施 例						比 較 例					参考例
	1	2	3	4	5	6	1	2	3	4	5	
曲げ強度 (MPa)	75	61	62	73	60	65	69	58	50	69	60	110
曲げ弾性率 (GPa)	5.5	4.9	5.3	4.6	4.3	4.5	5.1	3.5	2.5	3.2	4.2	4.1
ノッチ付 アイゾット 衝撃強度 (KJ/m ²)	20	10	10	30	26	18	5	4	100	13	6	8

【0059】表1、2、3からも明らかな様に、比較例1、2では6時間の連続運転中に時々紡績糸の切断が生じ、また成形品の衝撃特性も乏しい。これに対し実施例では、ストランド切れによるトラブルは一度も見られず、また曲げ強度、曲げ弾性率、衝撃特性の全てにおいてバランスの取れた強度特性を有している。また比較例3は、強化繊維として合成有機繊維のみを使用したもので、成形品の衝撃特性は非常に良好であるが、植物繊維紡績糸を使用していないため曲げ弾性率が低く、曲げ弾性の求められる用途への適性を欠く。比較例4は植物繊維量が不足するため曲げ弾性率が不足し、比較例5は合成有機繊維量が不足するため衝撃特性が悪い。また、参考例は強化繊維として従来のガラス繊維を使用したもの

で、曲げ特性は良好であるが、衝撃特性が乏しい。なお参考例のペレットは、前述した如くガラス繊維使用による様々の問題を有している。

【0060】

【発明の効果】本発明は以上の様に構成されており、主たる強化繊維として天然の植物繊維紡績糸を使用し、これを適量の合成有機繊維と併用することにより、植物繊維の有する強化特性を有効に発揮させつつ、短繊維からなる植物繊維の使用に起因する連続含浸操業の難点を克服し、優れた生産性の下で優れた強度特性を備えた成形品を与える繊維強化熱可塑性樹脂ペレットを提供し得ることになった。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

識別記号

F I

ターマコード' (参考)

B 2 9 K 201:00

B 2 9 K 201:00

501:00

501:00

C 0 8 L 101:00

C 0 8 L 101:00

(72) 発明者 門脇 良策

神戸市西区高塚台1丁目5番5号 株式会社神戸製鋼所神戸総合技術研究所内

(72) 発明者 山田 照彦

名古屋市中村区名駅4丁目7番23号 豊田通商株式会社内

(72) 発明者 平野 康雄

神戸市西区高塚台1丁目5番5号 株式会社神戸製鋼所神戸総合技術研究所内

(72) 発明者 井上 亨

愛知県安城市和泉町北大木4番地14 株式会社タケヒロ内

Fターム(参考) 4F072 AA01 AA08 AA09 AB03 AB04
AB05 AB06 AB07 AB14 AB22
AB24 AB34 AC08 AD04 AD05
AD37 AD39 AD44 AD52 AG06
AG12 AH04 AH05 AH13 AH23
AH31 AJ19 AK04 AL01
4F201 AA01 AA11 AA24 AD16 AD19
BA02 BC01 BC02 BC12 BC15
BC37 BD04 BL13 BL36 BL42
BL44